

BUNDESRREPUBLIK DEUTSCHLAND

M.H.
**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 17. AUG 1999

WIPO PCT

09/720892EP99/4585

Bescheinigung

Die Bayer Aktiengesellschaft in Leverkusen/Deutschland hat eine Patentanmeldung
unter der Bezeichnung

"Substituierte Phenyluracile"

am 9. Juli 1998 beim Deutschen Patent- und Markenamt eingereicht.

Das angeheftete Stück ist eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprüngli-
chen Unterlage dieser Patentanmeldung.

Die Anmeldung hat im Deutschen Patent- und Markenamt vorläufig die Symbole
C 07 D und A 01 N der Internationalen Patentklassifikation erhalten.

München, den 22. Juni 1999

Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident

Im Auftrag

Aktenzeichen: 198 30 693.8

Ebert

Substituierte Phenyluracile

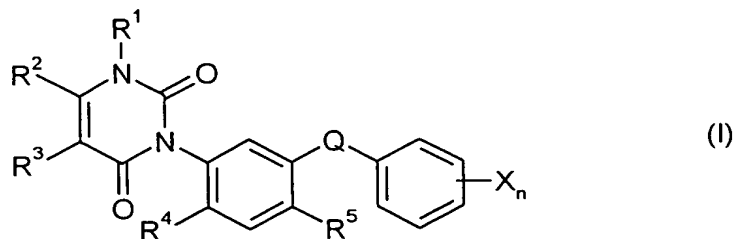
Die Erfindung betrifft neue substituierte Phenyluracile, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

5

Bestimmte substituierte Aryluracile sind bereits aus der (Patent-)Literatur bekannt (vgl. EP-A-255047, EP-A-260621, EP-A-408382, EP-A-438209, EP-A-473551, EP-A-517181, EP-A-563384, WO-A-91/00278, WO-A-91/07393, WO-A-93/14073, US-A-4979982, US-A-5084084, US-A-5127935, US-A-5154755, US-A-5169430, US-A-5486610, US-A-5356863). Diese Verbindungen haben jedoch bisher keine besondere Bedeutung erlangt.

10

Es wurden nun neue substituierte Phenyluracile der allgemeinen Formel (I)



15

in welcher

n für die Zahlen 0, 1, 2, 3, 4 oder 5 steht,

20

Q für O (Sauerstoff), S (Schwefel), SO, SO₂, NH oder N(Alkyl) steht,

R¹ für Wasserstoff, Amino oder gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht,

25

R² für Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl oder Alkoxycarbonyl steht,

R³ für Wasserstoff, Halogen oder gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht,

- R⁴ für Wasserstoff, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Halogen steht,
- R⁵ für Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen oder jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl oder Alkoxy steht, und
- 5 X für Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Alkylcarbonyl-
- 10 amino, Alkoxycarbonylamino, Alkylsulfonylamino, Alkenyl, Alkenyloxy, Alkenyloxycarbonyl, Alkinyl, Alkinyloxy oder Alkinyloxycarbonyl steht - wobei für den Fall, daß n größer als 1 ist, X in den einzelnen möglichen Verbindungen auch verschiedene der angegebenen Bedeutungen haben kann,
- 15 gefunden.
- In den Definitionen sind die Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl - auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie in Alkoxy - jeweils geradkettig oder verzweigt.
- 20 Soweit die erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) Substituenten mit asymmetrischen Kohlenstoffatomen enthalten, betrifft die Erfindung jeweils die R-Enantiomeren und die S-Enantiomeren sowie beliebige Mischungen dieser Enantiomeren, insbesondere die Racemate.
- 25 Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise substituierte Phenyluracile der Formel (I), in welcher
- n für die Zahlen 0, 1, 2, 3 oder 4 steht,
- 30 Q für O (Sauerstoff), S (Schwefel), SO, SO₂, NH oder N(C₁-C₄-Alkyl) steht,

- R¹ für Wasserstoff, Amino oder gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes C₁-C₄-Alkyl steht,
- 5 R² für Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl steht,
- 10 R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₁-C₄-Alkyl steht,
- R⁴ für Wasserstoff, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor oder Brom steht,
- 15 R⁵ für Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom oder jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Alkoxy steht, und
- 20 X für Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, Iod, für jeweils gegebenenfalls durch Hydroxy, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Fluor, Chlor, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₂-C₄-Alkenyl-oxycarbonyl, C₂-C₄-Alkinyl-oxycarbonyl, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl oder Di-(C₁-C₄-alkyl)-amino-carbonyl substituiertes
- 25 Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Alkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkylaminocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoff-
- 30 atomen in den Alkylgruppen, für Dialkylaminocarbonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Alkylcarbonylamino, Alkoxy-carbonylamino,

Alkylsulfonylamino, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Alkenyl, Alkenyloxy, Alkenyloxycarbonyl, Alkynyl, Alkinyloxy oder Alkinyloxycarbonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen steht.

5

Die Erfindung betrifft insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher

n für die Zahlen 1, 2 oder 3 steht,

10

Q für O (Sauerstoff), S (Schwefel), SO, SO₂, NH oder N(CH₃) steht,

R¹ für Wasserstoff, Amino oder jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

15

R² für Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl steht,

20

R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl oder Ethyl steht,

R⁴ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

25

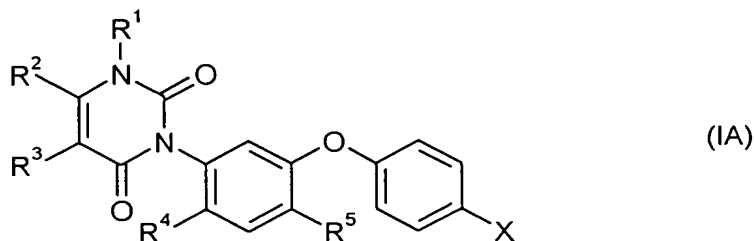
R⁵ für Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Tri-fluormethyl steht, und

30

X für Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl,

Ethylsulfonyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl,
 Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl, Allyloxycarbonyl, Propargyloxy-
 carbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylamino-
 carbonyl, Dimethylaminocarbonyl oder Diethylamino-carbonyl substituiertes
 5 Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n-
 oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-
 Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl,
 Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino,
 für Dimethylamino oder Diethylamino, für jeweils gegebenenfalls durch
 10 Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes
 Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n-
 oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-
 Propylaminocarbonyl, für Dimethylaminocarbonyl oder Diethylaminocarbonyl,
 für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Acetylamino,
 15 Propionylamino, n- oder i-Butyrylamino, Methoxycarbonylamino, Ethoxy-
 carbonylamino, n- oder i-Propoxycarbonylamino, Methylsulfonylamino, Ethyl-
 sulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino, n-, i-, s- oder t-Butylsulfonyl-
 amino, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor,
 Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiertes Ethenyl, Propenyl,
 20 Propenyloxy, Propenyloxycarbonyl, Ethinyl, Propinyl, Propinyloxy oder
 Propinyloxycarbonyl steht.

Eine ganz besonders bevorzugte Gruppe sind diejenigen Verbindungen der Formel
 (IA),

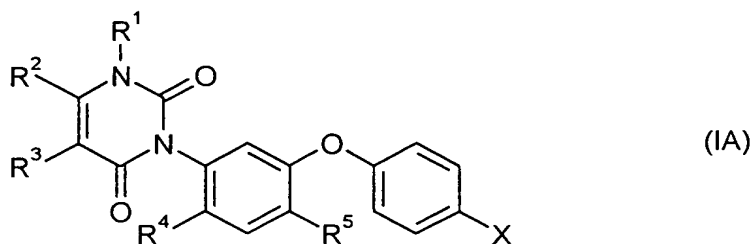


25 in welcher

R¹ für Wasserstoff, Amino oder Methyl steht,

- R^2 für Trifluormethyl steht,
 R^3 für Wasserstoff, Chlor oder Methyl steht,
 5 R^4 für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,
 R^5 für Cyano oder Thiocarbamoyl steht, und
 10 X für Hydroxy, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl, Allyloxycarbonyl, Propargyloxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl oder Diethylamino-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl steht.

20 Eine weitere ganz besonders bevorzugte Gruppe sind diejenigen Verbindungen der Formel (IA),



in welcher

- 25 R^1 für Wasserstoff, Amino oder Methyl steht,
 R^2 für Trifluormethyl steht,

R^3 für Wasserstoff, Chlor oder Methyl steht,

R^4 für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

5 R^5 für Fluor, Chlor, Brom oder Trifluormethyl steht, und

10 X für Hydroxy, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl, Allyloxycarbonyl, Propargyloxy-carbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylamino-carbonyl, Dimethylaminocarbonyl oder Diethylamino-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl steht.

15

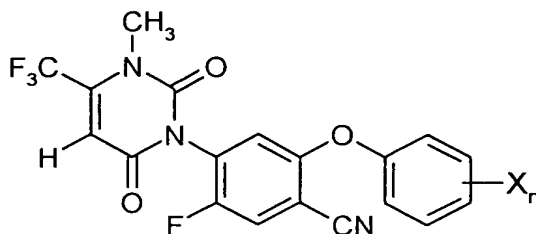
Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- oder Zwischenprodukte. Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

20

Beispiele für die erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) sind in den nachstehenden Gruppen aufgeführt.

25

Gruppe 1

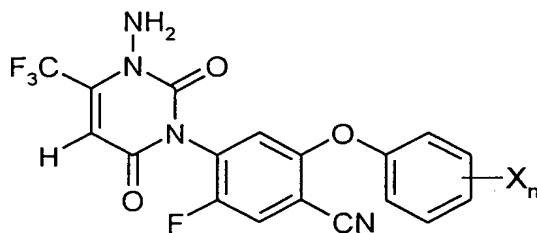


X_n hat dabei die in der nachstehenden Auflistung angegebenen Bedeutungen:

2-Hydroxy, 3-Hydroxy, 4-Hydroxy, 2-Cyano, 3-Cyano, 4-Cyano, 2-Carboxy, 3-Carboxy, 4-Carboxy, 2-Fluor, 3-Fluor, 4-Fluor, 2,3-Difluor, 2,4-Difluor, 2,5-Difluor,
 5 2,6-Difluor, 3,4-Difluor, 3,5-Difluor, 2-Chlor, 3-Chlor, 4-Chlor, 2,3-Dichlor, 2,4-Dichlor, 2,5-Dichlor, 2,6-Dichlor, 3,4-Dichlor, 3,5-Dichlor, 2-Brom, 3-Brom, 4-Brom, 2-Methyl, 3-Methyl, 4-Methyl, 2,3-Dimethyl, 2,4-Dimethyl, 2,5-Dimethyl, 2,6-Dimethyl, 3,4-Dimethyl, 3,5-Dimethyl, 2-Trifluormethyl, 3-Trifluormethyl, 4-Trifluormethyl, 2-Methoxy, 3-Methoxy, 4-Methoxy, 2,4-Dimethoxy, 2,5-Dimethoxy, 2,6-Dimethoxy, 3,4-Dimethoxy, 2-Difluormethoxy, 4-Difluormethoxy, 2-Trifluormethoxy, 4-Trifluormethoxy, 4-Carboxymethoxy, 4-Methoxycarbonylmethoxy, 4-Ethoxycarbonylmethoxy, 4-n-Propoxycarbonylmethoxy, 4-i-Propoxycarbonylmethoxy, 4-(1-Carboxy-ethoxy), 4-(1-(Methoxycarbonyl)-ethoxy), 4-(1-(Ethoxycarbonyl)-ethoxy), 4-(1-(n-Propoxycarbonyl)-ethoxy), 4-(1-(i-Propoxycarbonyl)-ethoxy).

15

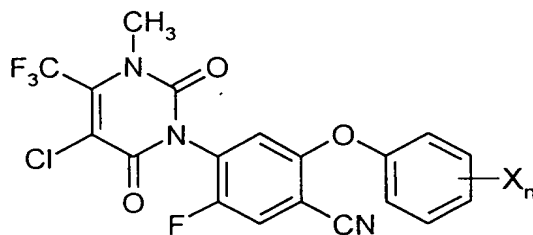
Gruppe 2



20

X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

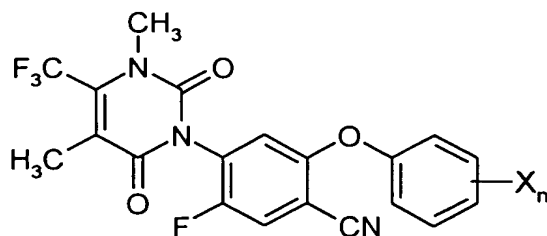
Gruppe 3



X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 4

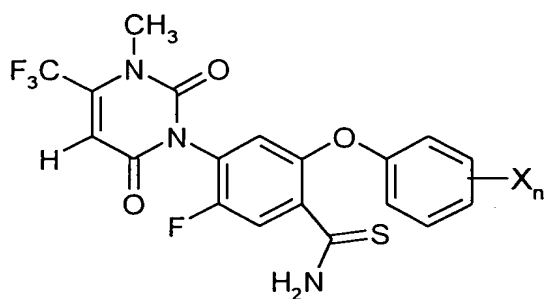
5



X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

10

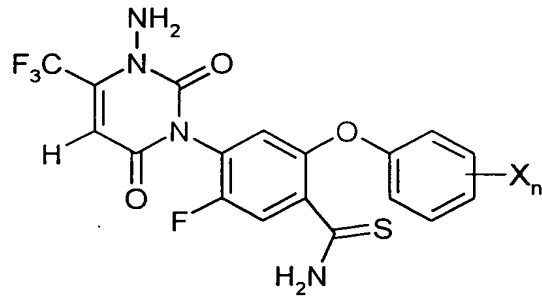
Gruppe 5



X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

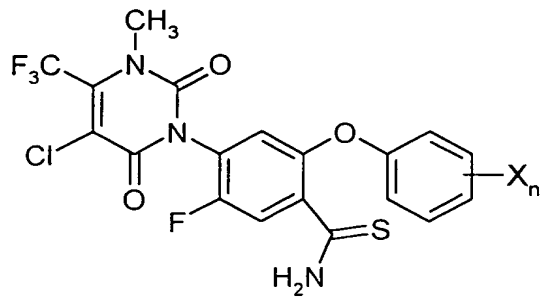
15

Gruppe 6



- 5 X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

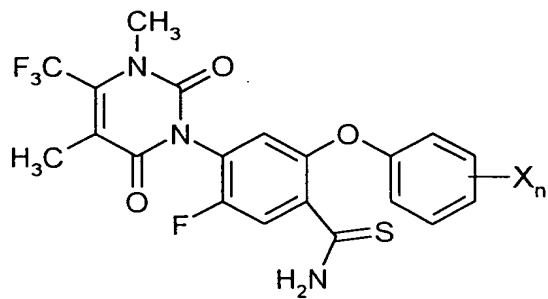
Gruppe 7



10

- X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 8

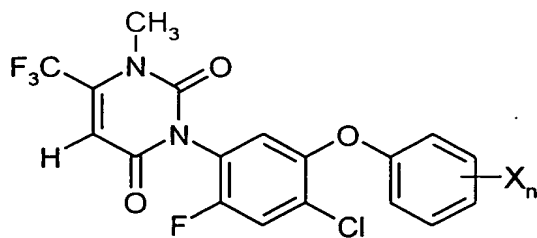


15

X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 9

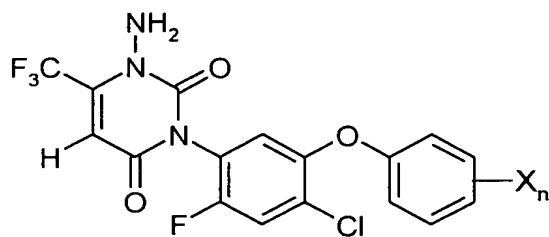
5



X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 10

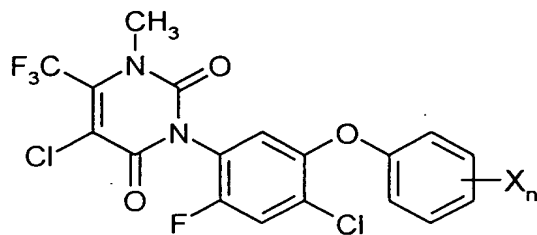
10



X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

15

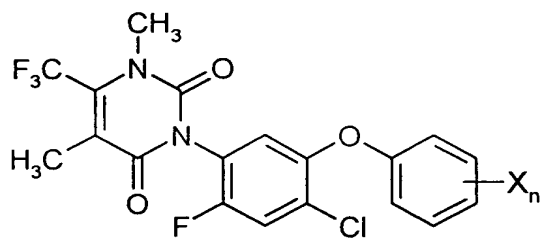
Gruppe 11



X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

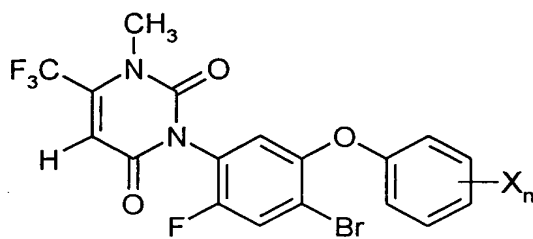
20

Gruppe 12



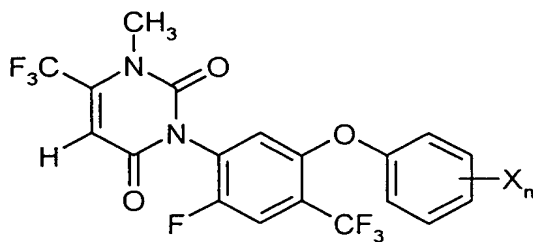
5 X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 13

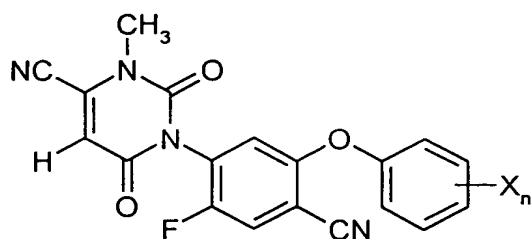


10 X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 14



15 X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 15

- 5 X_n hat dabei die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

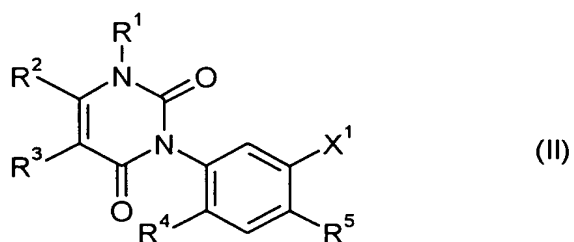
Die neuen substituierten Phenyluracile der allgemeinen Formel (I) weisen interessante biologische Eigenschaften auf. Sie zeichnen sich insbesondere durch starke herbizide Wirksamkeit aus.

10

Man erhält die neuen substituierten Phenyluracile der allgemeinen Formel (I), wenn man

- (a) Halogenophenyluracile der allgemeinen Formel (II)

15



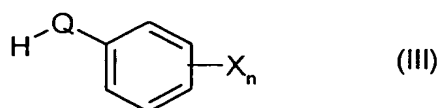
in welcher

R^1 , R^2 , R^3 , R^4 und R^5 die oben angegebene Bedeutung haben und

20

X^1 für Halogen steht,

mit Arylverbindungen der allgemeinen Formel (III)



in welcher

n, Q und X die oben angegebene Bedeutung haben,

5

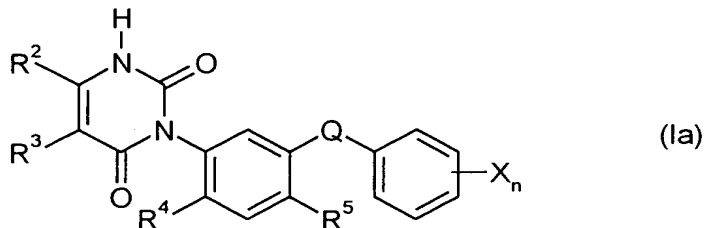
- oder mit Metallsalzen von Verbindungen der allgemeinen Formel (III) -

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

10

oder wenn man

(b) substituierte Phenyluracile der allgemeinen Formel (Ia)



15

in welcher

n, Q, R², R³, R⁴, R⁵ und X die oben angegebene Bedeutung haben,

20

mit 1-Aminooxy-2,4-dinitro-benzol oder mit Alkylierungsmitteln der allgemeinen Formel (IV)



25

in welcher

A¹ für gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht und

X² für Halogen oder die Gruppierung -O-SO₂-O-A¹ steht,

5

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

10

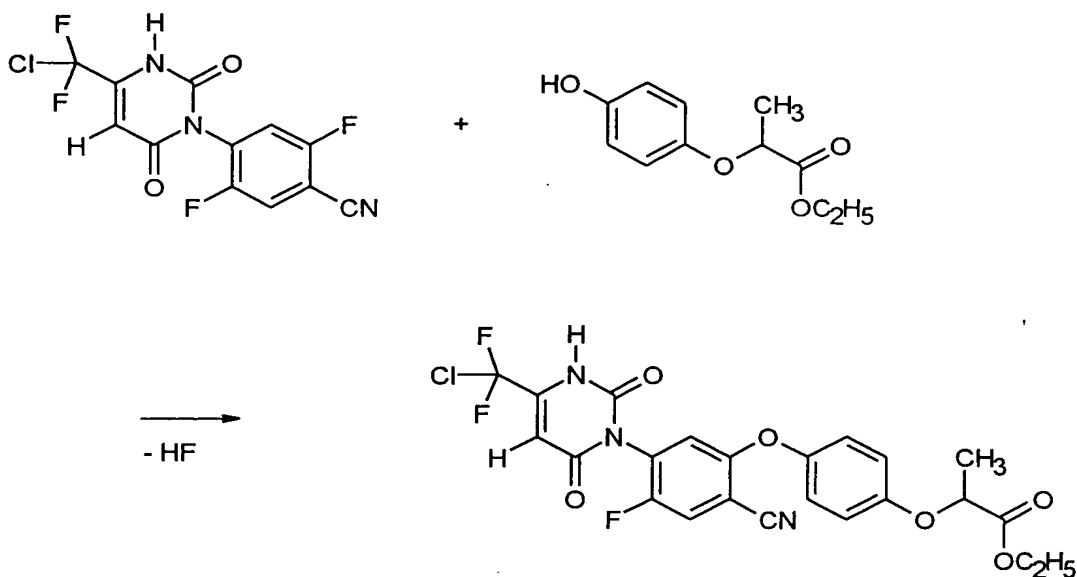
und gegebenenfalls im Anschluß daran im Rahmen der Substituentendefinition auf übliche Weise elektrophile oder nucleophile bzw. Oxidations- oder Reduktionsreaktionen durchführt.

15

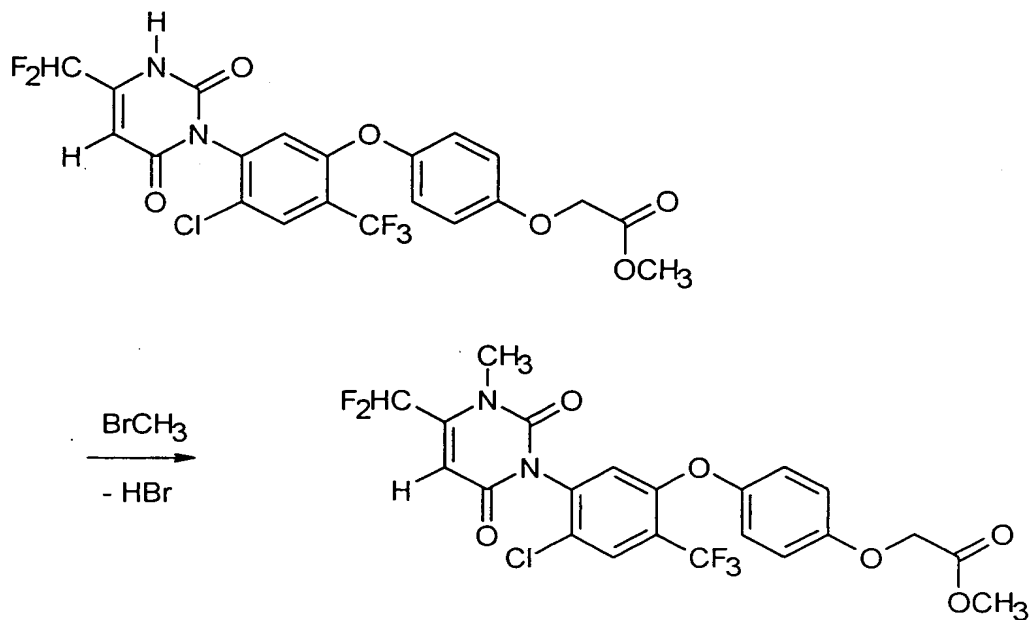
Die Verbindungen der allgemeinen Formel (I) können nach üblichen Methoden in andere Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß obiger Definition umgewandelt werden, beispielsweise durch Veresterung bzw. Hydrolyse (z.B. X: OCH₂COOH → OCH₂COOC₂H₅, OCH(CH₃)COOCH₃ → OCH(CH₃)COOH), Umsetzung mit Dicyan bzw. Hydrogensulfid (z.B. R⁵: Br → CN, CN → CSNH₂, vgl. die Herstellungsbeispiele).

20

Verwendet man beispielsweise 1-(4-Cyano-2,5-difluor-phenyl)-4-chlordifluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin und 1-(4-Hydroxy-phenoxy)-propionsäureethylester als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) durch das folgende Formelschema skizziert werden:



- 5 Verwendet man beispielsweise 1-[2-Chlor-4-trifluormethyl-5-(4-methoxycarbonylmethoxyphenoxy)-phenyl]-4-difluormethyl-3,6-dihydro-2,6-dioxo-1(2H)-pyrimidin und Methylbromid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Halogenophenyluracile sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) haben R^1 , R^2 , R^3 , R^4 und R^5 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 , R^2 , R^3 , R^4 und R^5 angegeben wurden; X^1 steht vorzugsweise für Fluor oder Chlor, insbesondere für Fluor.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (II) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. EP-A-648749).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Arylverbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der Formel (III) haben n , Q und X vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n , Q und X angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (III) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden substituierten Phenyluracile sind durch die Formel (Ia) allgemein definiert. In der Formel (Ia) haben n , Q , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 und X vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für n , Q , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 und X angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (Ia) für Verfahren (b) sind als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung; sie können nach dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) hergestellt werden.

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Alkylierungsmittel sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In der Formel (IV) stehen vorzugsweise A¹ für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und X² für Chlor, Brom, Iod, Methylsulfonyloxy oder Ethylsulfonyloxy; insbesondere stehen A¹ für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl und X² für Chlor, Brom, Iod, Methylsulfonyloxy oder Ethylsulfonyloxy.

10

Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

Die erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) werden vorzugsweise unter Verwendung von Verdünnungsmitteln durchgeführt. Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) kommen neben Wasser vor allem inerte organische Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-ke-ton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Butyronitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methyl-formanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretri-
amid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid, Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, Ethylenglykolmonomethylether, Ethylenglykolmonoethylether, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

30

Als Reaktionshilfsmittel für die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b) kommen im allgemeinen die üblichen anorganischen oder organischen Basen oder Säure-

akzeptoren in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkali-
metall-acetate, -amide, -carbonate, -hydrogencarbonate, -hydride, -hydroxide oder
-alkanolate, wie beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Calcium-acetat, Lithium-,
Natrium-, Kalium- oder Calcium-amid, Natrium-, Kalium- oder Calcium-carbonat,
5 Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrogencarbonat, Lithium-, Natrium-, Kalium-
oder Calcium-hydrid, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, Natrium-
oder Kalium- -methanolat, -ethanolat, -n- oder -i-propanolat, -n-, -i-, -s- oder -t-
butanolat; weiterhin auch basische organische Stickstoffverbindungen, wie beispiels-
weise Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropyl-
10 amin, N,N-Dimethyl-cyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin,
N,N-Dimethyl-anilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-
Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-
Ethyl-2-methyl-pyridin, 4-Dimethylamino-pyridin, N-Methyl-piperidin, 1,4-Diaza-
bicyclo[2,2,2]-octan (DABCO), 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), oder 1,8-
15 Diazabicyclo[5,4,0]-undec-7-en (DBU).

Als weitere Reaktionshilfsmittel für die erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b)
kommen auch Phasentransfer-Katalysatoren in Betracht. Als Beispiele für solche
Katalysatoren seien genannt:

20

Tetrabutylammonium-bromid, Tetrabutylammonium-chlorid, Tetraoctylammonium-
chlorid, Tetrabutylammonium-hydrogensulfat, Methyl-trioctylammonium-chlorid, He-
xadecyl-trimethylammonium-chlorid, Hexadecyl-trimethylammonium-bromid, Benzyl-
trimethylammonium-chlorid, Benzyl-triethylammonium-chlorid, Benzyl-trimethylam-
25 monium-hydroxid, Benzyl-triethylammonium-hydroxid, Benzyl-tributylammonium-
chlorid, Benzyl-tributylammonium-bromid, Tetrabutylphosphonium-bromid, Tetra-
butylphosphonium-chlorid, Tributyl-hexadecylphosphonium-bromid, Butyl-triphenyl-
phosphonium-chlorid, Ethyl-trioctylphosphonium-bromid, Tetraphenylphosphonium-
bromid.

30

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen
Verfahren (a) und (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen

arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C.

5 Die erfindungsgemäßen Verfahren werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, die erfindungsgemäßen Verfahren unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - durchzuführen.

10 Zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren werden die Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird im allgemeinen mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Die Auf-

15 arbeitung wird nach üblichen Methoden durchgeführt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten auf-

20 wachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

25 Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica,

30 Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

5 Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

10

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

15

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

20

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

25

30

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) zeigen starke herbizide Wirksamkeit und ein breites Wirkungsspektrum bei Anwendung auf dem Boden und auf oberirdische Pflanzenteile. Sie eignen sich in gewissem Umfang auch zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

5

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln.

10

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

20

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkyl-arylpolyglykoether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweiß-

25

30

hydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

5 Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

10 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

15 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

20 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise

25 Acetochlor, Acifluorfen(-sodium), Aclonifen, Alachlor, Alloxymid(-sodium), Ametryne, Amidochlor, Amidosulfuron, Anilofos, Asulam, Atrazine, Azafenidin, Azimsulfuron, Benazolin(-ethyl), Benfuresate, Bensulfuron(-methyl), Bentazon, Benzofenap, Benzoylprop(-ethyl), Bialaphos, Bifenox, Bispyribac(-sodium), Bromobutide, Bromofenoxim, Bromoxynil, Butachlor, Butroxydim, Butylate, Cafenstrole, Caloxydim, Carbetamide, Carfentrazone(-ethyl), Chlormethoxyfen, Chloramben, 30 Chloridazon, Chlorimuron(-ethyl), Chlornitrofen, Chlorsulfuron, Chlortoluron, Cindon(-ethyl), Cinmethylin, Cinosulfuron, Clethodim, Clodinafop(-propargyl), Clomazone, Clomeprop, Clopyralid, Clopyrasulfuron(-methyl), Cloransulam(-methyl),

Cumyluron, Cyanazine, Cybutryne, Cycloate, Cyclosulfamuron, Cycloxydim, Cyhalo-
 fop(-butyl), 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Desmedipham, Diallylate, Dicamba, Diclofop(-
 methyl), Diclosulam, Diethatyl(-ethyl), Difenzoquat, Diflufenican, Diflufenzopyr, Di-
 mefuron, Dimepiperate, Dimethachlor, Dimethametryn, Dimethenamid, Dimexyflam,
 5 Dinitramine, Diphenamid, Diquat, Dithiopyr, Diuron, Dymron, Epoprodan, EPTC,
 Esprocarb, Ethalfluralin, Ethametsulfuron(-methyl), Ethofumesate, Ethoxyfen,
 Ethoxysulfuron, Etobenzanid, Fenoxaprop(-P-ethyl), Flamprop(-isopropyl), Flam-
 prop(-isopropyl-L), Flamprop(-methyl), Flazasulfuron, Fluazifop(-P-butyl), Fluazo-
 late, Flucarbazone, Flufenacet, Flumetsulam, Flumiclorac(-pentyl), Flumioxazin,
 10 Flumipropyn, Flumetsulam, Fluometuron, Fluorochloridone, Fluoroglycofen(-ethyl),
 Flupoxam, Flupropacil, Flurpyrsulfuron(-methyl, -sodium), Flurenol(-butyl),
 Fluridone, Fluroxypyr(-methyl), Flurprimidol, Flurtamone, Fluthiacet(-methyl), Fluthi-
 amide, Fomesafen, Glufosinate(-ammonium), Glyphosate(-isopropylammonium),
 Halosafen, Haloxyfop(-ethoxyethyl), Haloxyfop(-P-methyl), Hexazinone, Imaza-
 15 methabenz(-methyl), Imazamethapyr, Imazamox, Imazapic, Imazapyr, Imazaquin,
 Imazethapyr, Imazosulfuron, Iodosulfuron, Ioxynil, Isopropalin, Isoproturon, Isouron,
 Isoxaben, Isoxachlortole, Isoxaflutole, Isoxapyrifop, Lactofen, Lenacil, Linuron,
 MCPA, MCPP, Mefenacet, Mesotrione, Metamitron, Metazachlor, Methabenzthiaz-
 uron, Metobenzuron, Metobromuron, (alpha-)Metolachlor, Metosulam, Metoxuron,
 20 Metribuzin, Metsulfuron(-methyl), Molinate, Monolinuron, Naproanilide, Naprop-
 amide, Neburon, Nicosulfuron, Norflurazon, Orbencarb, Oryzalin, Oxadiargyl, Oxa-
 diazon, Oxasulfuron, Oxaziclomefone, Oxyfluorfen, Paraquat, Pelargonsäure, Pendi-
 methalin, Pentoxazone, Phenmedipham, Piperophos, Pretilachlor, Primisulfuron(-
 methyl), Prometryn, Propachlor, Propanil, Propaquizafop, Propisochlor, Propyz-
 25 amide, Prosulfocarb, Prosulfuron, Pyraflufen(-ethyl), Pyrazolate, Pyrazosulfuron(-
 ethyl), Pyrazoxyfen, Pyribenzoxim, Pyributicarb, Pyridate, Pyriminobac(-methyl),
 Pyriothiobac(-sodium), Quinchlorac, Quinmerac, Quinoclamine, Quizalofop(-P-ethyl),
 Quizalofop(-P-tefuryl), Rimsulfuron, Sethoxydim, Simazine, Simetryn, Sulcotrione,
 Sulfentrazone, Sulfometuron(-methyl), Sulfosate, Sulfosulfuron, Tebutam, Tebuthi-
 30 uron, Tepraloxydim, Terbutylazine, Terbutryn, Thenylchlor, Thiafluamide, Thiazop-
 pyr, Thidiazimin, Thifensulfuron(-methyl), Thiobencarb, Tiocarbazil, Tralkoxydim,

Triallate, Triasulfuron, Tribenuron(-methyl), Triclopyr, Tridiphane, Trifluralin und Triflusulfuron.

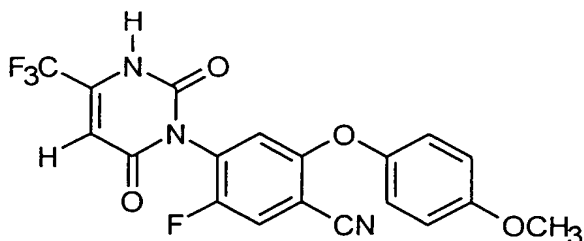
5 Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

10 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

15 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

20 Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.

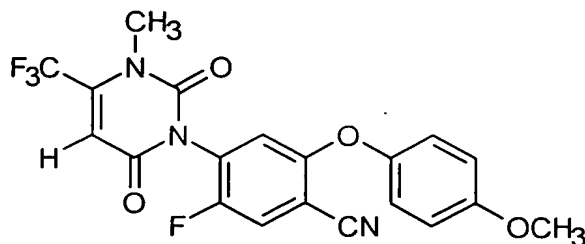
25 Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele:**Beispiel 1**

(Verfahren (a))

2,5 g (10 mMol) 4-Methoxy-phenol werden in 50 ml Dimethylsulfoxid vorgelegt und mit 1,6 g Natriumhydrid (60%ig) versetzt. Die Mischung wird 30 Minuten bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Dann werden 3,2 g (10 mMol) 4-(3,6-Dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin-1-yl)-2,5-difluor-benzonitril dazu gegeben. Die Reaktionsmischung wird 18 Stunden bei 60°C gerührt und anschließend auf etwa die gleiche Volumenmenge 1N-Salzsäure gegossen. Das kristallin angefallene Produkt wird durch Absaugen isoliert, mit einer Mischung aus 30 ml Essigsäureethylester und 300 ml Diethylether verrührt und trocken gesaugt. Die organische Mutterlauge wird im Wasserstrahlvakuum eingeengt und der Rückstand säulenchromatografisch (Kieselgel, Chloroform/Essigsäureethylester, Vol.: 2:1) aufgearbeitet. Die hierbei erhaltene erste Fraktion wird im Wasserstrahlvakuum eingeengt, der Rückstand in siedendem Methylenchlorid gelöst, nach Erkalten das überstehende Lösungsmittel abdekantiert, der Rückstand mit Diethylether/Diisopropylether verrührt und das kristalline Produkt durch Absaugen isoliert.

Man erhält 0,90 g (21% der Theorie) 4-(3,6-Dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin-1-yl)-5-fluor-2-(4-methoxy-phenoxy)-benzonitril vom Schmelzpunkt 84°C.

Beispiel 2

(Verfahren (b))

5

Eine Mischung aus 0,50 g (1,2 mMol) 4-(3,6-Dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin-1-yl)-5-fluor-2-(4-methoxy-phenoxy)-benzonitril, 0,20 g (1,8 mMol) Dimethylsulfat, 0,30 g (2,4 mMol) Kaliumcarbonat und 100 ml Aceton wird 15 Stunden unter Rückfluß erhitzt und anschließend im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Der Rückstand wird mit 50 ml 1N-Salzsäure / 50 ml Essigsäureethylester geschüttelt, die organische Phase abgetrennt, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, in Essigsäureethylester gelöst, mit 5 %iger wässriger Dinatriumhydrogenphosphat-Lösung gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit Petrolether verrührt und das Lösungsmittel im Wasserstrahlvakuum sorgfältig abdestilliert.

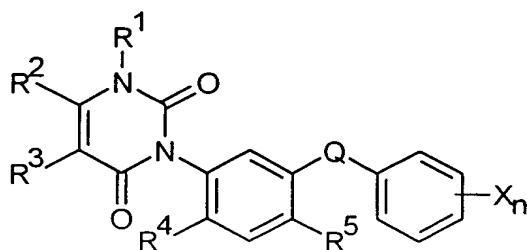
15

20

Man erhält 0,3 g (57% der Theorie) 4-(3,6-Dihydro-2,6-dioxo-3-methyl-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin-1-yl)-5-fluor-2-(4-methoxy-phenoxy)-benzonitril vom Schmelzpunkt 62°C.

Analog zu den Herstellungsbeispielen 1 und 2 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden.

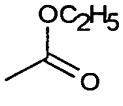

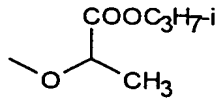

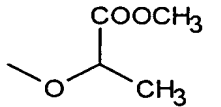
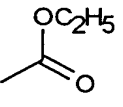
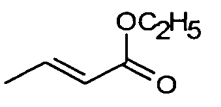
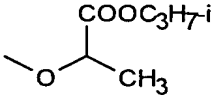
25

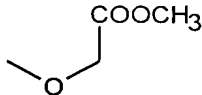
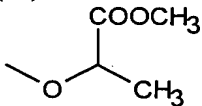
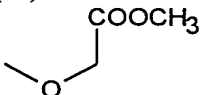


(I)

Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

Bsp.-Nr.	n	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(Position-) X	Physikal. Daten und stereochem. Angaben
3	1	O	H	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	(R-Enantiomer)
4	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	Fp.: 118°C (R-Enantiomer)
5	1	O	H	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	Fp.: 105°C (R-Enantiomer)
6	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	Fp.: 146°C (R-Enantiomer)
7	1	O	NH ₂	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	Fp.: 152°C (R-Enantiomer)

Bsp.- Nr.	n	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(Position-) X	Physikal. Daten und stereochem. Angaben
8	1	O	H	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	¹ H-NMR: δ=6,42 ppm (s, D ₆ -DMSO)
9	1	O	H	CF ₃	H	F		(4-) OCH ₃	¹ H-NMR: δ=5,63 ppm (s, D ₆ -DMSO)
10	1	O	H	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	Fp.: 95°C (R-Enantiomer)
11	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F		(4-) 	¹ H-NMR: δ=6,51 ppm (s, D ₆ -DMSO) (R-Enantiomer)
12	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	Fp.: 155°C
13	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	Fp.: 98°C (E-Isomer)
14	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	Fp.: 144°C (R-Enantiomer)
15	0	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	-	
16	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(2-) F	

Bsp.- Nr.	n	Q	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(Position-) X	Physikal. Daten und stereochem. Angaben
17	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(4-) 	
18	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(3-) 	
19	1	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(3-) 	
20	2	O	CH ₃	CF ₃	H	F	CN	(2,4-) Cl ₂	

Anwendungsbeispiele:

Beispiel A

5 Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach ca. 24 Stunden wird der Boden so mit der Wirkstoffzubereitung besprüht, daß die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge pro Flächeneinheit ausgebracht wird. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 Liter Wasser pro Hektar die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge ausgebracht wird.

20 Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

25 0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

 100 % = totale Vernichtung

In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 4 und 6 starke Wirkung gegen Unkräuter.

30

Beispiel B

Post-emergence-Test

- 5 Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton
 Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

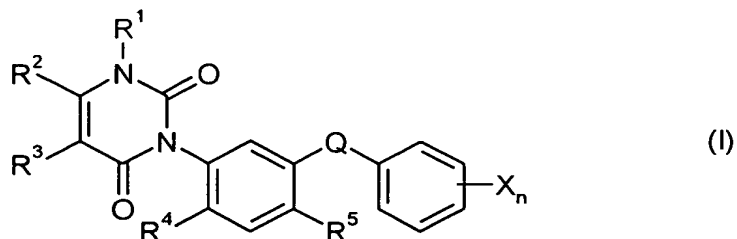
15 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

- 20 Es bedeuten:
 0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)
 100 % = totale Vernichtung

25 In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiel 4 und 6 starke Wirkung gegen Unkräuter.

Patentansprüche

1. Substituierte Phenyluracile der allgemeinen Formel (I)



in welcher

n für die Zahlen 0, 1, 2, 3, 4 oder 5 steht,

Q für O (Sauerstoff), S (Schwefel), SO, SO₂, NH oder N(Alkyl) steht,

R¹ für Wasserstoff, Amino oder gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht,

R² für Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl oder Alkoxycarbonyl steht,

R³ für Wasserstoff, Halogen oder gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht,

R⁴ für Wasserstoff, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Halogen steht,

R⁵ für Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen oder jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl oder Alkoxy steht, und

X für Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Di-

alkylamino, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Di-
alkylaminocarbonyl, Alkylcarbonylamino, Alkoxycarbonylamino, Al-
kylsulfonylamino, Alkenyl, Alkenyloxy, Alkenyloxycarbonyl, Alkynyl,
Alkinyloxy oder Alkinyloxycarbonyl steht - wobei für den Fall, daß n
5 größer als 1 ist, X in den einzelnen möglichen Verbindungen auch ver-
schiedene der angegebenen Bedeutungen haben kann.

2. Substituierte Phenyluracile gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

10 n für die Zahlen 0, 1, 2, 3 oder 4 steht,

Q für O (Sauerstoff), S (Schwefel), SO, SO₂, NH oder N(C₁-C₄-Alkyl)
steht,

15 R¹ für Wasserstoff, Amino oder gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy,
Fluor, Chlor, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substitu-
iertes C₁-C₄-Alkyl steht,

20 R² für Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder jeweils gege-
benenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor oder C₁-C₄-Alkoxy sub-
stituiertes C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Alkoxycarbonyl steht,

25 R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder gegebenenfalls durch Fluor
oder Chlor substituiertes C₁-C₄-Alkyl steht,

R⁴ für Wasserstoff, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor oder
Brom steht,

30 R⁵ für Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom oder
jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes C₁-
C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Alkoxy steht, und

5 X für Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thio-
carbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, Iod, für jeweils gegebenenfalls durch
Hydroxy, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Fluor, Chlor, C₁-C₄-Alkoxy,
C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-
Alkyl-carbonyl, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₂-C₄-Alkenyl-oxycarbonyl,
C₂-C₄-Alkynyl-oxycarbonyl, C₁-C₄-Alkylamino-carbonyl oder Di-(C₁-
C₄-alkyl)-amino-carbonyl substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio,
Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Alkylamino mit jeweils 1 bis 6
Kohlenstoffatomen, für Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoff-
atomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano,
Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkylcarbonyl,
Alkoxycarbonyl oder Alkylaminocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlen-
stoffatomen in den Alkylgruppen, für Dialkylaminocarbonyl mit 1 bis 6
Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls
15 durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Alkylcarbonylamino,
Alkoxycarbonylamino, Alkylsulfonylamino, oder für jeweils gege-
benenfalls durch Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor, Brom oder C₁-C₄-
Alkoxy-carbonyl substituiertes Alkenyl, Alkenyloxy, Alkenyloxy-
carbonyl, Alkynyl, Alkynyloxy oder Alkynyloxycarbonyl mit jeweils bis
20 zu 6 Kohlenstoffatomen steht.

3. Substituierte Phenyluracile gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

25 n für die Zahlen 1, 2 oder 3 steht,

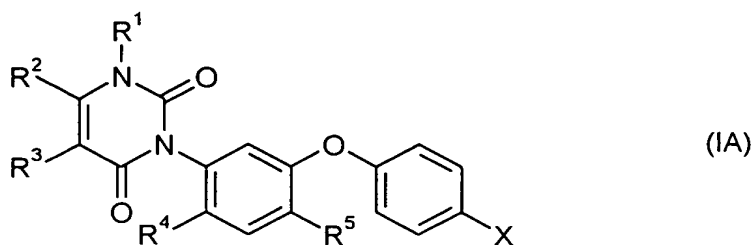
Q für O (Sauerstoff), S (Schwefel), SO, SO₂, NH oder N(CH₃) steht,

R¹ für Wasserstoff, Amino oder jeweils gegebenenfalls durch Cyano,
Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n-
30 oder i-Propyl steht,

- 5
10
15
20
25
30
- R² für Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl steht,
- R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methyl oder Ethyl steht,
- R⁴ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,
- R⁵ für Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Trifluormethyl steht, und
- X für Hydroxy, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Allyloxycarbonyl, Propargyloxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylamino-carbonyl, Dimethylaminocarbonyl oder Diethylamino-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, für Dimethylamino oder Diethylamino, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy substituiertes Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylamino-carbonyl, für Dimethylaminocarbonyl oder Diethylaminocarbonyl, für

jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Acetyl-
amino, Propionylamino, n- oder i-Butyroylamino, Methoxycarbonyl-
amino, Ethoxycarbonylamino, n- oder i-Propoxycarbonylamino, Me-
thylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino,
n-, i-, s- oder t-Butylsulfonylamino, oder für jeweils gegebenenfalls
durch Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor, Methoxycarbonyl oder Ethoxy-
carbonyl substituiertes Ethenyl, Propenyl, Propenyloxy, Propenyloxy-
carbonyl, Ethinyl, Propinyl, Propinyloxy oder Propinyloxycarbonyl
steht.

4. Substituierte Phenyluracile der allgemeinen Formel (IA) gemäß Anspruch 1,



in welcher

R^1 für Wasserstoff, Amino oder Methyl steht,

R^2 für Trifluormethyl steht,

R^3 für Wasserstoff, Chlor oder Methyl steht,

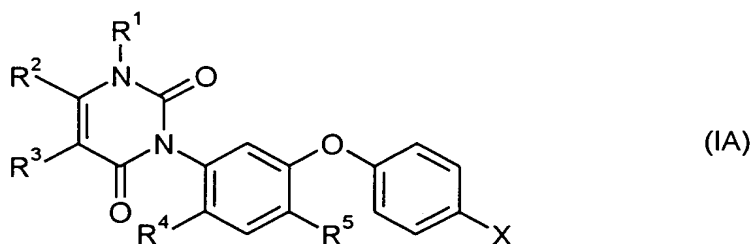
R^4 für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

R^5 für Cyano oder Thiocarbamoyl steht, und

X für Hydroxy, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy,

Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl, Allyloxycarbonyl, Propargyloxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylamino-carbonyl, Dimethylaminocarbonyl oder Diethylamino-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl steht.

5. Substituierte Phenyluracile der allgemeinen Formel (IA) gemäß Anspruch 1,



in welcher

R^1 für Wasserstoff, Amino oder Methyl steht,

R^2 für Trifluormethyl steht,

R^3 für Wasserstoff, Chlor oder Methyl steht,

R^4 für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

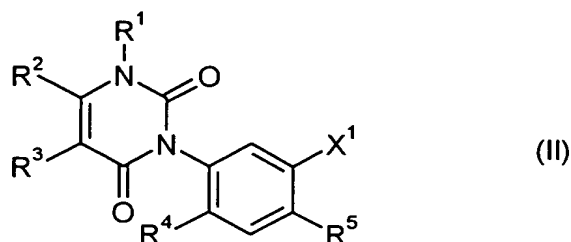
R^5 für Fluor, Chlor, Brom oder Trifluormethyl steht, und

X für Hydroxy, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxy-carbonyl, Allyloxycarbonyl, Propargyloxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylamino-carbonyl, Dimethylaminocarbonyl

oder Diethylamino-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl steht.

6. Verfahren zum Herstellen von substituierten Phenyluracilen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß man

(a) Halogenophenyluracile der allgemeinen Formel (II)

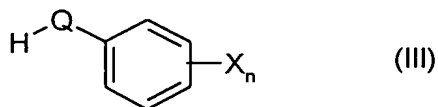


in welcher

R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebene Bedeutung haben und

X¹ für Halogen steht,

mit Arylverbindungen der allgemeinen Formel (III)



in welcher

n, Q und X die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebene Bedeutung haben,

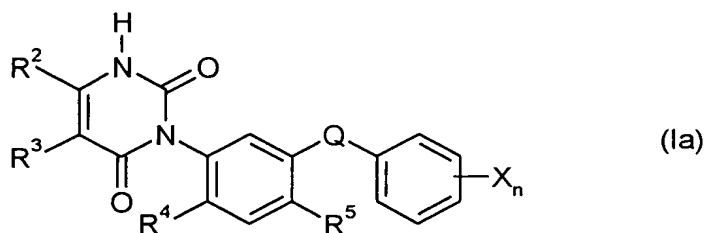
- oder mit Metallsalzen von Verbindungen der allgemeinen Formel (III) -

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder daß man

5

(b) substituierte Phenyluracile der allgemeinen Formel (Ia)



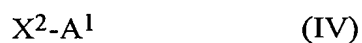
in welcher

10

n, Q, R², R³, R⁴, R⁵ und X die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebene Bedeutung haben,

mit 1-Aminooxy-2,4-dinitro-benzol oder mit Alkylierungsmitteln der allgemeinen Formel (IV)

15



in welcher

20

A¹ für gegebenenfalls substituiertes Alkyl steht und

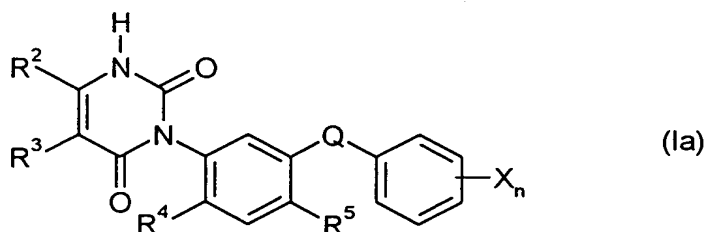
X² für Halogen oder die Gruppierung -O-SO₂-O-A¹ steht,

25

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

und gegebenenfalls im Anschluß daran im Rahmen der Substituenten-
definition auf übliche Weise elektrophile oder nucleophile bzw. Oxida-
tions- oder Reduktionsreaktionen durchführt.

- 5 7. Substituierte Phenyluracile der allgemeinen Formel (Ia)



in welcher

- 10 n, Q, R², R³, R⁴, R⁵ und X die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebene
Bedeutung haben.

8. Verwendung von mindestens einem substituierten Phenyluracil gemäß einem
der Ansprüche 1 bis 5 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.

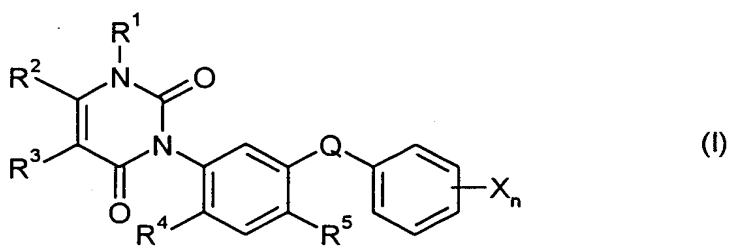
15

9. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch den Gehalt an mindestens einem
substituierten Phenyluracil gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5 und üblichen
Streckmitteln.

Substituierte Phenyluracile

Z u s a m m e n f a s s u n g

Die Erfindung betrifft neue substituierte Phenyluracile der allgemeinen Formel (I)



in welcher

n, Q, R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und X die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben, sowie Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

THIS PAGE BLANK (USPTO)